PCT WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6:

C07D 417/02, A01N 43/54, 43/78

A1

WO 99/52906 (11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

21. Oktober 1999 (21.10.99)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP99/02087

(22) Internationales Anmeldedatum:

26, März 1999 (26.03.99)

(30) Prioritätsdaten:

8. April 1998 (08.04.98) DE 198 15 716.9 24. November 1998 (24.11.98) DE 198 54 082.5

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): ANDREE, Roland [DE/DE]; Dechant-Miebach-Weg 37, D-40764 Langenfeld (DE). DOLLINGER, Markus [DE/US]; 13210 Knox, Overland Park, KS 66213 (US). DREWES, Mark, Wilhelm [DE/DE]; Goethestrasse 38, D-40764 Langenfeld (DE). WETCHOLOWSKY, Ingo [DE/BR]; Condominio Estância Marambaia, Rua Avaré, 500, CEP-13280-000 Vinhedo, S.P. (BR). ERDELEN, Christoph [DE/DE]; Unterbüscherhof 15, D-42799 Leichlingen (DE). MYERS, Randy, Allen [US/DE]; Heltorfer Mark 47, D-40489 Düsseldorf (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: AKTIENGE-BAYER SELLSCHAFT: D-51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

- (54) Title: SUBSTITUTED OXAZOLYLE AND THIAZOLYL URACIL HERBICIDES
- (54) Bezeichnung: SUBSTITUIERTE OXAZOLYL- UND THIAZOLYL-URACIL HERBIZIDE

(57) Abstract

The invention relates to novel substituted oxazolyle and thiazolyle uracils of general formula (I), wherein Q stand for oxygen or sulfur; R1 stands for hydrogen, amino or optionally cyano, halogen or C₁-C₄-alkoxy-substituted alkyl with 1 to 4 carbon atoms; R² represents formyl, hydroximinomethyl, cyano, carboxy, C₁-C₄ alkoxy-carbonyl, carbamoyl, thiocarbamoyl or optionally halogen-substituted

alkyl with 1 to 4 carbon atoms; R3 stands for hydrogen, cyano, halogen or optionally halogen-substituted alkyl with 1 to 4 carbon atoms; R4 represents hydrogen, halogen or optionally halogen-substituted alkyl with 1 to 4 carbon atoms and R5 stands for optionally substituted phenyl, naphthyl or pyridyl, whereby the substituents are chosen from amongst the following: nitro, amino, hydroxy, mercapto, carboxy, cyano, carbamoyl, thiocarbamoyl, halogen (optionally cyano, halogen, C₁–C₄–alkoxy, C₁–C₄–alkoxy–carbonyl, C1-C4-alkylamino-carbonyl, di-(C1-C4-alkyl)-amino-carbonyl, phenylamino-carbonyl or N-(C1-C4-alkyl)-phenyl-amino-carbonyl substituted) alkyl, alkoxy, alkythio, alkylsulfinyl, alkylsulfonyl, alkylamino, dialkylamino, alkylcarbonyl, alkoxycarbonyl, alkylaminocarbonyl, dialkylaminocarbonyl, alkylcarbonylamino, alkylsulfonylamino, N,N-bis-alkylcarbonyl-amino, N,N-bis-alkylsulfonyl-amino and N-alkylcarbonyl-N-alkylsulfonyl-amino with up to 6 carbon atoms in the alkyl groups and cycloalkylcarbonylamino and cycloalkylsulfonylamino with 3 to 6 carbon atoms in the cycloalkyl groups. The invention also relates to several methods for the production of said substances and their use in the treatment of plants, more particularly as herbicides and insecticides.

(57) Zusammenfassung

Die vorliegende Erfindung betrifft neue substituierte Oxazolyl- und Thiazolyl-uracile der allgemeinen Formel (I), in welcher Q für Sauerstoff oder Schwefel steht, R¹ für Wasserstoff, Amino oder für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, R² für Formyl, Hydroximinomethyl, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, R³ für Wasserstoff, Cyano, Halogen oder für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, R⁴ für Wasserstoff, Halogen oder für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, und R⁵ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl, Naphthyl oder Pyridyl steht, wobei die möglichen Substituenten aus folgender Aufzählung ausgewählt sind: Nitro, Amino, Hydroxy, Mercapto, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, (jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₁-C₄-Alkylamino-carbonyl, Di-(C₁-C₄-Alkyl)-amino-carbonyl, Phenylamino, Halogen, C₁-C₄-Alkyl)-phenyl-amino-carbonyl substituiertes) Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkylsulfonyl-amino, N,N-Bis-alkylsulfonyl-amino, N,N-Bis-alkylsulfonyl-amino und N-Alkylcarbonyl-N-alkylsulfonyl-amino mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen sowie Cycloakylcarbonylamino und Cycloalkylsulfonylamino mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalklygruppen, sowie mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Pflanzenbehandlungsmittel, insbesondere als Herbizide und Insektizide.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	ТJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
ВJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	$\mathbf{z}\mathbf{w}$	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	\mathbf{SG}	Singapur		

SUBSTITUIERTE OXAZOLYL-UND THIAZOLYL-URACIL HERBIZIDE

Die vorliegende Erfindung betrifft neue substituierte Oxazolyl- und Thiazolyluracile, mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Pflanzenbehandlungsmittel, insbesondere als Herbizide und Insektizide.

Es sind bereits zahlreiche Heterocyclyluracile mit herbiziden bzw. insektiziden Eigenschaften bekannt geworden (vgl. JP-A 91287585, JP-A 93202031, Chem. Abstr. 116, 235 650 und Chem. Abstr. 120, 107 048). So läßt sich z.B. 1-(3-Chlor-5-trifluormethyl-pyridin-2-yl)-3,6-dihydro-2,6-dioxo-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin zur Bekämpfung von Unkraut verwenden. Bei niedrigen Aufwandmengen ist die Wirksamkeit dieses Stoffes aber nicht immer befriedigend.

Es wurden nun neue substituierte Oxazolyl- und Thiazolyl-uracile der allgemeinen Formel (I)

$$R^2$$
 N
 O
 Q
 R^3
 Q
 R^5
 Q
 Q
 Q
 Q
 Q
 Q

in welcher

20

5

10

- Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,
- R¹ für Wasserstoff, Amino oder für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

R² für Formyl, Hydroximinomethyl, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

- 5 R³ für Wasserstoff, Cyano, Halogen oder für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,
 - R⁴ für Wasserstoff, Halogen oder für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, und

R⁵ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl, Naphthyl oder Pyridyl steht, wobei die möglichen Substituenten aus folgender Aufzählung ausgewählt sind:

Nitro, Amino, Hydroxy, Mercapto, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, (jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₁-C₄-Alkylamino-carbonyl, Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino-carbonyl, Phenylamino-carbonyl oder N-(C₁-C₄-Alkyl)-phenylamino-carbonyl substituiertes) Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Alkylcarbonylamino, Alkylsulfonylamino, N,N-Bis-alkylsulfonyl-amino und N-Alkylcarbonyl-N-alkylsulfonyl-amino mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen sowie Cycloalkylcarbonylamino und Cycloalkylsulfonylamino mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen.

In den Definitionen sind die Kohlenwasserstoffketten, wie Alkyl - auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie in Alkoxy - jeweils geradkettig oder verzweigt.

30

10

15

20

R¹ steht bevorzugt für Wasserstoff, Amino oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, noder i-Propyl;

- 5 R² steht bevorzugt für Formyl, Hydroximinomethyl, Cyano, Carboxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl;
- 10 R³ steht bevorzugt für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, noder i-Propyl;
- steht bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl;
- R⁵ steht bevorzugt für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl, Naphthyl oder Pyridyl, wobei die möglichen Substituenten vorzugsweise aus folgender Aufzählung ausgewählt sind:

25

30

Nitro, Amino, Hydroxy, Mercapto, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, (jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, noder i-Propoxycarbonyl, noder i-Propoxycarbonyl, noder i-Propylaminocarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, noder i-Propylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Phenylaminocarbonyl oder N-Methyl-phenylaminocarbonyl substituiertes) Methyl, Ethyl, noder i-Propyl, noder i-Propyl, noder i-Butyl, Methoxy, Ethoxy, noder i-Propoxy, noder i-Propyl, noder i-Butyl, Methylsulfinyl, noder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, noder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, noder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, noder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, noder

i-Propylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, soder t-Butylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyroyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyl, Acetylamino, Propionylamino, n- oder i-Butyroylamino, Methylsulfonylamino, Ethylsulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino, n-, i-, s- oder t-Butylsulfonylamino, N,N-Bis-N,N-Bis-propionyl-amino, N,N-Bis-methylsulfonyl-amino, acetyl-amino. N.N-Bis-ethylsulfonyl-amino, N-Acetyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Acetyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-Propionyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Propionyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-n-Butyroyl-N-methylsulfonyl-amino, N-n-Butyroyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-i-Butyroyl-N-methylsulfonyl-amino, N-i-Butyroyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-Pivaloyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Pivaloyl-N-ethylsulfonyl-amino, Cyclopropylcarbonylamino, Cyclopropylsulfonylamino.

- Q steht bevorzugt für Schwefel;
- R¹ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Amino, Methyl oder Ethyl;
- R² steht besonders bevorzugt für Trifluormethyl;
 - R³ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Chlor oder Methyl;
- 25 R⁴ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder Methyl;
 - R⁵ steht besonders bevorzugt für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl oder Pyridyl, wobei die möglichen Substituenten insbesondere aus folgender Aufzählung ausgewählt sind:

30

5

10

15

Nitro, Amino, Hydroxy, Mercapto, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, (jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbony substituiertes) Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Acetylamino, Propionylamino, noder i-Butyroylamino, Methylsulfonylamino, Ethylsulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino, n-, i-, s- oder t-Butylsulfonylamino, N,N-Bis-acetylamino, N,N-Bis-propionyl-amino, N,N-Bis-methylsulfonyl-amino, N,N-Bisethylsulfonyl-amino, N-Acetyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Acetyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-Propionyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Propionyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-n-Butyroyl-N-methylsulfonyl-amino, N-n-Butyroyl-Nethylsulfonyl-amino, N-i-Butyroyl-N-methylsulfonyl-amino, N-i-Butyroyl-Nethylsulfonyl-amino, N-Pivaloyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Pivaloyl-Nethylsulfonyl-amino, Cyclopropylcarbonylamino, Cyclopropylsulfonylamino.

20 Erfindungsgemäß bevorzugt sind die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

Erfindungsgemäß besonders bevorzugt sind die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

Eine ganz besonders bevorzugte Gruppe sind die diejenigen Verbindungen der Formel (I), in welcher R¹ für Amino steht und Q, R², R³, R⁴ und R⁵ die oben angegebene Bedeutung haben.

25

5

10

WO 99/52906

PCT/EP99/02087

Eine weitere ganz besonders bevorzugte Gruppe sind die diejenigen Verbindungen der Formel (I), in welcher R¹ für Methyl steht und Q, R², R³, R⁴ und R⁵ die oben als insbesondere bevorzugt angegebene Bedeutung haben.

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restedefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangs- oder Zwischenprodukte. Diese Restedefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.

10

Die neuen substituierten Oxazolyl- und Thiazolyl-uracile der allgemeinen Formel (I) weisen interessante biologische Eigenschaften auf. Sie zeichnen sich insbesondere durch starke herbizide und insektizide Wirksamkeit aus.

- Man erhält die neuen substituierten Oxazolyl- und Thiazolyl-uracile der allgemeinen Formel (I), wenn man
 - (a) Aminoalkensäureester der allgemeinen Formel (II)

$$R^{2} \xrightarrow{NH_{2}} O$$

$$R^{3} A^{1}$$
(II)

20

in welcher

R² und R³ die oben angegebenen Bedeutungen haben und

25

A¹ für Alkyl, Aryl oder Arylalkyl steht,

mit substituierten Oxazolyl- oder Thiazolyl-urethanen (Oxazolyl- oder Thiazolyl-carbamaten) der allgemeinen Formel (III)

$$A^{2} \downarrow H \downarrow N \downarrow R^{5}$$
 (III)

in welcher

5

- Q, R⁴ und R⁵ die oben angegebenen Bedeutungen haben und
- A² für Alkyl, Aryl oder Arylalkyl steht,
- oder mit entsprechenden Oxazolyl- oder Thiazolyl-isocyanaten -

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder wenn man

(b) substituierte Oxazolyl- oder Thiazolyl-uracile der allgemeinen Formel (Ia),

$$R^2$$
 N
 N
 N
 R^5
 R^4
(Ia)

in welcher

 $Q,\,R^2,\,R^3,\,R^4$ und $R^5\,$ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit 1-Aminooxy-2,4-dinitro-benzol oder mit Alkylierungsmitteln der allgemeinen Formel (IV)

$$X^{1}-A^{3}$$
 (IV)

5

in welcher

A³ für gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht und

10 X¹ für Halogen oder die Gruppierung -O-SO₂-O-A³ steht,

gegebenenfalls in Gegenwart von Reaktionshilfsmitteln und gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln umsetzt,

- und gegebenenfalls im Anschluß daran im Rahmen der Substituentendefinition auf übliche Weise elektrophile oder nucleophile Substitutionsreaktionen, Additions- oder Spaltungsreaktionen, Oxidations- oder Reduktionsreaktionen im Rahmen der Substituentendefinition durchführt.
- Verwendet man beispielsweise 3-Amino-2,4,4,4-tetrafluor-crotonsäure-methylester und N-(5-Chlor-4-phenylthiazol-2-yl)-O-methyl-carbamat als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

$$F_3C \xrightarrow{NH_2} O \xrightarrow{CH_3} \xrightarrow{H} O \xrightarrow{CH_3} \xrightarrow{H} O \xrightarrow{F_3C} \xrightarrow{NH_2} O \xrightarrow{F_3C} \xrightarrow{NH_2} O \xrightarrow{CH_3} \xrightarrow{H} O \xrightarrow{CH_3} O \xrightarrow{F_3C} O \xrightarrow{NH_2} O \xrightarrow{CH_3} O \xrightarrow{NH_2} O \xrightarrow{CH_3} O \xrightarrow{NH_2} O \xrightarrow{CH_3} O \xrightarrow{NH_2} O O O O O O O O O O$$

25

Verwendet man beispielsweise 1-[4-(2,6-Dichlor-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-5-chlor-4-chlordifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin und Methylbromid als

Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

5

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Aminoalkensäureester sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der Formel (II) haben R^2 und R^3 vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt oder ganz besonders bevorzugt für R^2 und R^3 angegeben wurden; A^1 steht vorzugsweise für C_1 - C_4 -Alkyl, Phenyl oder Benzyl, insbesondere für Methyl oder Ethyl.

15

10

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (II) sind bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. J. Heterocycl. Chem. 9 (1972), 513-522).

20

25

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Oxazolyl- oder Thiazolyl-urethane sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der Formel (III) haben Q, R⁴ und R⁵ vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt oder ganz besonders bevorzugt für Q, R⁴ und R⁵ angegeben wurden; A² steht vorzugsweise für C₁-C₄-Alkyl, Phenyl oder Benzyl, insbesondere für Methyl oder Ethyl.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (III) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. DE-A-2132431, DE-A-2453106, WO-A-8202384, WO-A-9724343, Indian J. Chem., Sect. B 28B (1989), 786-789, Herstellungsbeispiele).

5

10

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden substituierten Oxazolyl- und Thiazolyluracile sind durch die Formel (Ia) allgemein definiert. In der Formel (Ia) haben Q, R², R³, R⁴ und R⁵ vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt oder ganz besonders bevorzugt für Q, R², R³, R⁴ und R⁵ angegeben wurden.

15

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (Ia) für Verfahren (b) sind als neue Stoffe auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung; sie können nach dem erfindungsgemäßen Verfahren (a) hergestellt werden.

20

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Alkylierungsmittel sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In der Formel (IV) stehen vorzugsweise A³ für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und X¹ für Chlor, Brom, Iod, Methylsulfonyloxy oder Ethylsulfonyloxy; insbesondere stehen A³ für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl und X¹ für Chlor, Brom, Iod, Methylsulfonyloxy oder Ethylsulfonyloxy.

25

Die Ausgangsstoffe der Formel (IV) sind bekannte organische Synthesechemikalien.

30

Die erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) werden vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt. Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen

Verfahren (a) und (b) kommen vor allem inerte organische Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-keton; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Butyronitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methyl-formanilid, N-Methyl-pyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid, Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, Ethylenglykolmonomethylether, Ethylenglykolmonoethylether, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonomethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

Als Reaktionshilfsmittel für die Verfahren (a) und (b) kommen im allgemeinen die üblichen anorganischen oder organischen Basen oder Säureakzeptoren in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise Alkalimetall- oder Erdalkalimetall- -acetate, -amide, -carbonate, -hydrogencarbonate, -hydride, -hydroxide oder -alkanolate, wie beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Calcium-acetat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-amid, Natrium-, Kalium- oder Calcium-carbonat, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrogencarbonat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydroxid, Natrium- oder Calcium-hydrid, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydroxid, Natrium- oder Kalium-methanolat, -ethanolat, -n- oder -i-propanolat, -n-, -i-, -s- oder -t-butanolat; weiter-hin auch basische organische Stickstoffverbindungen, wie beispielsweise Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Ethyl-diisopropylamin, N,N-Dimethyl-cyclohexylamin, Dicyclohexylamin, Ethyl-dicyclohexylamin, N,N-Dimethyl-anilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 3,4-Dimethyl- und 3,5-Dimethyl-pyridin, 5-Ethyl-2-methyl-pyridin, 4-Dimethylamino-pyridin, N-Methyl-piperidin, 1,4-Diazabicyclo-

[2,2,2]-octan (DABCO), 1,5-Diazabicyclo[4,3,0]-non-5-en (DBN), oder 1,8-Diazabicyclo[5,4,0]-undec-7-en (DBU).

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -20°C und +200°C, vorzugsweise zwischen 0°C und 180°C.

5

10

15

20

25

30

Die erfindungsgemäße Verfahren (a) und (b) werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, die erfindungsgemäßen Verfahren unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - durchzuführen.

Zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahrens werden die Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Umsetzung wird im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird im allgemeinen mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung wird nach üblichen Methoden durchgeführt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defoliants, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

<u>Dikotyle Unkräuter der Gattungen:</u> Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

<u>Dikotyle Kulturen der Gattungen:</u> Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

20

5

10

15

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen
mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-,
Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

PCT/EP99/02087 WO 99/52906

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eignen sich insbesondere zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen und dikotylen Kulturen sowohl im Vorauflauf- als auch im Nachauflauf-Verfahren.

5

Die Wirkstoffe eignen sich auch zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, vorzugsweise Arthropoden und Nematoden, insbesondere Insekten und Spinnentieren, die in der Landwirtschaft, in Forsten, im Vorrats- und Materialschutz sowie auf dem Hygienesektor vorkommen. Sie sind gegen normal sensible und resistente Arten sowie gegen alle oder einzelne Entwicklungsstadien wirksam. Zu den oben erwähnten Schädlingen gehören:

Aus der Ordnung der Isopoda z.B. Oniscus asellus, Armadillidium vulgare, Porcellio scaber.

15

10

Aus der Ordnung der Diplopoda z.B. Blaniulus guttulatus.

Aus der Ordnung der Chilopoda z.B. Geophilus carpophagus, Scutigera spec.

20

Aus der Ordnung der Symphyla z.B. Scutigerella immaculata.

Aus der Ordnung der Thysanura z.B. Lepisma saccharina.

Aus der Ordnung der Collembola z.B. Onychiurus armatus.

25

Aus der Ordnung der Orthoptera z.B. Blatta orientalis, Periplaneta americana, Leucophaea maderae, Blattella germanica, Acheta domesticus, Gryllotalpa spp., Locusta migratoria migratorioides, Melanoplus differentialis, Schistocerca gregaria.

30

Aus der Ordnung der Dermaptera z.B. Forficula auricularia.

Aus der Ordnung der Isoptera z.B. Reticulitermes spp.

Aus der Ordnung der Anoplura z.B. Pediculus humanus corporis, Haematopinus spp., Linognathus spp.

5

Aus der Ordnung der Mallophaga z.B. Trichodectes spp., Damalinea spp.

Aus der Ordnung der Thysanoptera z.B. Hercinothrips femoralis, Thrips tabaci.

10

Aus der Ordnung der Heteroptera z.B. Eurygaster spp., Dysdercus intermedius, Piesma quadrata, Cimex lectularius, Rhodnius prolixus, Triatoma spp.

15

Aus der Ordnung der Homoptera z.B. Aleurodes brassicae, Bemisia tabaci, Trialeurodes vaporariorum, Aphis gossypii, Brevicoryne brassicae, Cryptomyzus ribis, Aphis fabae, Aphis pomi, Eriosoma lanigerum, Hyalopterus arundinis, Macrosiphum avenae, Myzus spp., Pemphigus spp., Phorodon humuli, Phylloxera vastatrix, Rhopalosiphum padi, Empoasca spp., Euscelis bilobatus, Nephotettix cincticeps, Lecanium corni, Saissetia oleae, Laodelphax striatellus, Nilaparvata

lugens, Aonidiella aurantii, Aspidiotus hederae, Pseudococcus spp. Psylla spp.

20

25

30

Aus der Ordnung der Lepidoptera z.B. Pectinophora gossypiella, Bupalus piniarius, Cheimatobia brumata, Lithocolletis blancardella, Hyponomeuta padella, Plutella maculipennis, Malacosoma neustria, Euproctis chrysorrhoea, Lymantria spp. Bucculatrix thurberiella, Phyllocnistis citrella, Agrotis spp., Euxoa spp., Feltia spp., Earias insulana, Heliothis spp., Spodoptera exigua, Mamestra brassicae, Panolis flammea, Prodenia litura, Spodoptera spp., Trichoplusia ni, Carpocapsa pomonella, Pieris spp., Chilo spp., Pyrausta nubilalis, Ephestia kuehniella, Galleria mellonella, Tineola bisselliella, Tinea pellionella, Hofmannophila pseudospretella, Cacoecia podana, Capua reticulana, Choristoneura fumiferana, Clysia ambiguella, Homona magnanima, Tortrix viridana.

Aus der Ordnung der Coleoptera z.B. Anobium punctatum, Rhizopertha dominica, Acanthoscelides obtectus, Bruchidius obtectus, Hylotrupes bajulus, Agelastica alni, Leptinotarsa decemlineata, Phaedon cochleariae, Diabrotica spp., Psylliodes chrysocephala, Epilachna varivestis, Atomaria spp., Oryzaephilus surinamensis, Anthonomus spp., Sitophilus spp., Otiorrhynchus sulcatus, Cosmopolites sordidus, Ceuthorrhynchus assimilis, Hypera postica, Dermestes spp., Trogoderma spp., Anthrenus spp., Attagenus spp., Lyctus spp., Meligethes aeneus, Ptinus spp., Niptus hololeucus, Gibbium psylloides, Tribolium spp., Tenebrio molitor, Agriotes spp., Conoderus spp., Melolontha melolontha, Amphimallon solstitialis, Costelytra zealandica.

Aus der Ordnung der Hymenoptera z.B. Diprion spp., Hoplocampa spp., Lasius spp., Monomorium pharaonis, Vespa spp.

Aus der Ordnung der Diptera z.B. Aedes spp., Anopheles spp., Culex spp., Drosophila melanogaster, Musca spp., Fannia spp., Calliphora erythrocephala, Lucilia spp., Chrysomyia spp., Cuterebra spp., Gastrophilus spp., Hyppobosca spp., Stomoxys spp., Oestrus spp., Hypoderma spp., Tabanus spp., Tannia spp., Bibio hortulanus, Oscinella frit, Phorbia spp., Pegomyia hyoscyami, Ceratitis capitata, Dacus oleae, Tipula paludosa.

Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. Xenopsylla cheopis, Ceratophyllus spp.

Aus der Ordnung der Arachnida z.B. Scorpio maurus, Latrodectus mactans.

25

30

5

10

Aus der Ordnung der Acarina z.B. Acarus siro, Argas spp., Ornithodoros spp., Dermanyssus gallinae, Eriophyes ribis, Phyllocoptruta oleivora, Boophilus spp., Rhipicephalus spp., Amblyomma spp., Hyalomma spp., Ixodes spp., Psoroptes spp., Chorioptes spp., Sarcoptes spp., Tarsonemus spp., Bryobia praetiosa, Panonychus spp., Tetranychus spp.

Zu den pflanzenparasitären Nematoden gehören z.B. Pratylenchus spp., Radopholus spp., Ditylenchus spp., Tylenchulus spp., Heterodera spp., Globodera spp., Meloidogyne spp., Aphelenchoides spp., Longidorus spp., Xiphinema spp., Trichodorus spp., Tylenchus spp., Helicotylenchus spp., Rotylenchus spp., Tylenchulus spp.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) eigen sich sehr gut zur Bekämpfung von pflanzenschädigenden Insekten, wie z.B. Reiszikaden (Nephotettix spp.).

10

15

5

In gewissem Umfang zeigen die erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) auch fungizide Wirkung, insbesondere gegen Phytophthora spp.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln.

25

30

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche

Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. Ammoniumsalze und natürliche 5 Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, 10 Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-15 Ether, z.B. Alkylarylpolyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

- Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.
- Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

5

10

15

20

25

30

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise

Acetochlor, Acifluorfen(-sodium), Aclonifen, Alachlor, Alloxydim(-sodium), Ametryne, Amidochlor, Amidosulfuron, Anilofos, Asulam, Atrazine, Azafenidin, Azimsulfuron, Benazolin(-ethyl), Benfuresate, Bensulfuron(-methyl), Bentazon. Benzofenap, Benzoylprop(-ethyl), Bialaphos, Bifenox, Bispyribac(-sodium), Bromobutide, Bromofenoxim, Bromoxynil, Butachlor, Butroxydim, Butylate, Cafenstrole, Caloxydim, Carbetamide, Carfentrazone(-ethyl), Chlomethoxyfen, Chloramben, Chloridazon, Chlorimuron(-ethyl), Chlornitrofen, Chlorsulfuron, Chlortoluron, Cinmethylin, Cinosulfuron, Clethodim, Clodinafop(-propargyl), Clomazone, Clomeprop, Clopyralid, Clopyrasulfuron(-methyl), Cloransulam(methyl), Cumyluron, Cyanazine, Cycloate, Cyclosulfamuron, Cycloxydim, Cyhalofop(-butyl), 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Desmedipham, Diallate, Dicamba, Diclofop(-methyl), Diclosulam, Diethatyl(-ethyl), Difenzoquat, Diflufenican, Diflufenzopyr, Dimefuron, Dimepiperate, Dimethachlor, Dimethametryn, Dimethametryn, amid, Dimexyflam, Dinitramine, Diphenamid, Diquat, Dithiopyr, Diuron, Dymron, Epoprodan, EPTC, Esprocarb, Ethalfluralin, Ethametsulfuron(-methyl), Ethofumesate, Ethoxyfen, Ethoxysulfuron, Etobenzanid, Fenoxaprop(-P-ethyl), Flamprop(-isopropyl), Flamprop(-isopropyl-L), Flamprop(-methyl), Flazasulfuron, Fluazifop(-P-butyl), Flumetsulam, Flumiclorac(-pentyl), Flumioxazin, Flumipropyn, Flumetsulam, Fluometuron, Fluorochloridone, Fluoroglycofen(-ethyl), Flupoxam, Flupropacil, Flurpyrsulfuron(-methyl, -sodium), Flurenol(-butyl), Fluridone, Fluroxypyr(-meptyl), Flurprimidol, Flurtamone, Fluthiacet(-methyl), Fluthiamide, Fomesafen, Glufosinate(-ammonium), Glyphosate(-isopropylammonium), Halosafen, Haloxyfop(-ethoxyethyl), Haloxyfop(-P-methyl), Hexazinone. Imazamethabenz(-methyl), Imazamethapyr, Imazamox, Imazapyr, Imaza-

5

10

15

25

quin, Imazethapyr, Imazosulfuron, Ioxynil, Isopropalin, Isoproturon, Isouron, Isoxaben, Isoxaflutole, Isoxapyrifop, Lactofen, Lenacil, Linuron, MCPA, MCPP, Mefenacet, Metamitron, Metazachlor, Methabenzthiazuron, Metobenzuron, Meto-(alpha-)Metolachlor, Metosulam, Metoxuron, Metribuzin, Metbromuron, sulfuron(-methyl), Molinate, Monolinuron, Naproanilide, Napropamide, Neburon, Nicosulfuron, Norflurazon, Orbencarb, Oryzalin, Oxadiargyl, Oxadiazon, Oxasulfuron. Oxaziclomefone, Oxyfluorfen, Paraquat, Pelargonsäure, Pendimethalin, Pentoxazone, Phenmedipham, Piperophos, Pretilachlor, Primisulfuron(-methyl), Prometryn, Propachlor, Propanil, Propaquizafop, Propisochlor, Propyzamide, Prosulfocarb. Prosulfuron. Pyraflufen(-ethyl), Pyrazolate, Pyrazosulfuron(-ethyl), Pyrazoxyfen, Pyribenzoxim, Pyributicarb, Pyridate, Pyriminobac(-methyl), Pyrithiobac(-sodium), Quinchlorac, Quinmerac, Quinoclamine, Quizalofop(-P-ethyl), Ouizalofop(-P-tefuryl), Rimsulfuron, Sethoxydim, Simazine, Simetryn, Sulcotrione, Sulfentrazone, Sulfometuron(-methyl), Sulfosate, Sulfosulfuron, Tebutam, Tebuthiuron, Terbuthylazine, Terbutryn, Thenylchlor, Thiafluamide, Thiazopyr, Thidiazimin, Thifensulfuron(-methyl), Thiobencarb, Tiocarbazil, Tralkoxydim, Triallate, Triasulfuron, Tribenuron(-methyl), Triclopyr, Tridiphane, Trifluralin und Triflusulfuron.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstruktur-verbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

- Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 5 kg pro ha.
- Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

WO 99/52906

Herstellungsbeispiele:

Beispiel 1

(Verfahren (a))

5

10

15

7,3 g (30 mMol) 3-Amino-4,4,4-trifluor-crotonsäure-ethylester werden in 50 ml N-Methyl-pyrrolidon vorgelegt, portionsweise mit 1,1 g Natriumhydrid versetzt und 30 Minuten bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Dann werden 0,55 g (30 mMol) N-[4-(2,6-Dichlor-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-O-ethyl-urethan dazu gegeben und die Reaktionsmischung wird 6 Stunden auf 160°C erhitzt. Nach Abkühlen auf Raumtemperatur wird mit etwa gleichen Volumenmengen wässriger 1N-Natronlauge und Essigsäureethylester auf etwa das dreifache Volumen verdünnt, nach Durchschütteln die wässrige Phase abgetrennt und mit Salzsäure angesäuert. Dann wird mit Essigsäureethylester geschüttelt, die organische Phase abgetrennt, mit Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeengt, der Rückstand mit Ether/Petrolether digeriert und das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

20

Man erhält 7,1 g (58% der Theorie) 1-[4-(2,6-Dichlor-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-4-trifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin vom Schmelzpunkt 293°C.

Beispiel 2

(Verfahren (b))

5

10

15

Eine Mischung aus 2,0 g (4,9 mMol) 1-[4-(2,6-Dichlor-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-4-trifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin, 1,2 g (4,9 mMol) 1-Amino-oxy-2,4-dinitro-benzol, 0,5 g Natriumhydrogencarbonat und 10 ml N,N-Dimethyl-formamid wird vier Tage bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Nach Zugabe von weiteren 0,7 g 1-Aminooxy-2,4-dinitro-benzol und 0,3 g Natriumhydrogencarbonat wird die Mischung weitere acht Tage bei Raumtemperatur gerührt. Die Mischung wird dann mit 1%iger wässriger Natronlauge auf etwa das doppelte Volumen verdünnt und mit Diethylether geschüttelt. Die organische Phase wird abgetrennt, nacheinander mit 2N-Natronlauge, Wasser, 2N-Salzsäure und gesättigter wässriger Kochsalz-Lösung gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeengt, der Rückstand mit Diethylether digeriert und das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

20

Man erhält 0,9 g (43% der Theorie) 3-Amino-1-[4-(2,6-Dichlor-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-4-trifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin vom Schmelzpunkt 250°C.

Beispiel 3

(Verfahren (b))

5

10

15

Eine Mischung aus 1,5 g (3,7 mMol) 1-[4-(2,6-Dichlor-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-4-trifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin, 0,5 g Dimethylsulfat, 0,55 g Kaliumcarbonat und 20 ml Aceton wird 45 Minuten unter Rückfluß erhitzt und anschließende im Wasserstrahlvakuum eingeengt. Der Rückstand wird mit etwa gleichen Volumenmengen Wasser, 2N-Salzsäure, Diethylether, Essigsäureethylester verrührt und das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 0,7 g (45% der Theorie) 1-[4-(2,6-Dichlor-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-3-methyl-4-trifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin vom Schmelzpunkt 271°C.

Beispiel 4

20 (Folgeumsetzung)

Eine Mischung aus 1,5 g (3,7 mMol) 1-[4-(2,6-Dichlor-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-4-trifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin, 0,4 g Methansulfonsäure-amid, 1 g Kaliumcarbonat und 10 ml N-Methyl-pyrrolidon wird zwei Stunden bei 180°C gerührt und nach Abkühlen auf mit Salzsäure angesäuerte Eiswasser gegossen. Dann wird mit Essigsäureethylester extrahiert, die organische Phase mit Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Vom Filtrat wird das Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum sorgfältig abdestilliert.

Man erhält 1,5 g (88% der Theorie) 1-[4-(2-Chlor-6-methylsulfonylamino-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-4-trifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin als amorphen Rückstand.

Beispiel 5

15

20

25

5

10

(Verfahren (b))

Eine Mischung aus 1,3 g (2,8 mMol) 1-[4-(2-Chlor-6-methylsulfonylamino-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-4-trifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin, 0,38 g Dimethylsulfat, 0,25 g Natriumhydrogencarbonat und 10 ml Aceton wird 20 Stunden unter Rückfluß erhitzt und anschließend im Wasserstrahlvakuum eingeengt. Der Rückstand wird mit 2N-Salzsäure und Essigsäureethylester geschüttelt, die organische Phase abgetrennt, mit Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeengt und der Rückstand durch Säulenchromatografie (Kieselgel, Chloroform/Essigsäureethylester) gereinigt.

Man erhält 0,40 g (30 % der Theorie) 1-[4-(2-Chlor-6-methylsulfonylamino-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-3-methyl-4-trifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin vom Schmelzpunkt 160°C.

Analog zu den Herstellungsbeispielen 1 bis 5 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der Formel (I) hergestellt werden.

$$R^2$$
 N
 O
 R^3
 N
 N
 R^5
 R^4
 (I)

Tabelle 1: Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

Bsp Nr.	Q	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Schmelz- punkt (°C)
6	S	Н	CF ₃	Н	Н	F	202
7	S	СН3	CF ₃	Н	Н	F	202
8	S	NH ₂	CF ₃	Н	Н	F	254

Bsp Nr.	Q	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Schmelz- punkt (°C)
9	S	Н	CF ₃	Н	Н		225
10	S	СН3	CF ₃	Н	Н		149
11	S	NH ₂	CF ₃	Н	Н		179
12	S	СН3	CF ₃	Н	Н	NO ₂	
13	S	NH ₂	CF ₃	Н	Н	NO ₂	
14	S	СН3	CF ₃	Н	Н	NO ₂	
15	S	СН3	CF ₃	Н	Н	CH ₃ HN SO ₂	
16	S	СН3	CF ₃	Н	Н	C ₂ H ₅ HN SO ₂	
17	S	СН3	CF ₃	Н	Н	OCH ₃	

Bsp Nr.	Q	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Schmelz- punkt (°C)
18	S	СН3	CF ₃	Н	Н	OCH ₃	
19	S	СН3	CF ₃	Н	Н	OCH ₃	
20	S	СН3	CF ₃	Н	Н	NO ₂	
21	S	СН3	CF ₃	Н	Н	NO ₂	188
22	S	СН3	CF ₃	Н	Н		,
23	S	СН3	CF ₃	Н	Н	CH ₃ C ₂ H ₅ SO ₂	
24	S	СН3	CF ₃	Н	Н	C ₂ H ₅ C ₂ H ₅	
25	S	СН3	CF ₃	Н	Н	C(CH ₃) ₃ C ₂ H ₅	

Bsp Nr.	Q	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Schmelz- punkt (°C)
26	S	Н	CF ₃	Н	Н	NO ₂	(¹H-NMR (D6-DMSO, δ): 6,46 ppm)
27	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	NH ₂	(¹H-NMR (D6-DMSO, δ): 7,89 ppm)
28	S	СН3	CF ₃	Н	Н	H ₅ C ₂ SO ₂	(¹H-NMR (D6-DMSO, δ): 8,22 ppm)
29	S	Н	CF ₃	Н	Н	CH ₃	(¹H-NMR (D6-DMSO, δ): 7,86 ppm)
30	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	CH ₃	118
31	S	NH ₂	CF ₃	Н	Н	CH ₃	(¹H-NMR (D6-DMSO, δ): 7,90 ppm)
32	S	Н	CF ₃	Н	Н	OCH ₃	(¹H-NMR (D6-DMSO, δ): 8,14 ppm)
33	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	ОН	

Bsp Nr.	Q	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Schmelz- punkt (°C)
34	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	OCH ₃ CH ₃	(R- Enantiomer)
35	S	СН₃	CF ₃	Н	Н	OCH ₃	
36	S	СН3	CF ₃	Н	Н	OC ₂ H ₅ OC ₂ H ₃	(R- Enantiomer)
37	S	Me	CF ₃	Н	Н	OCH ₃	(Racemat)
38	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	ОН	
39	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	ОН	
40	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	O OCH ₃	

Bsp Nr.	Q	R1	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Schmelz- punkt (°C)
41	S	СН₃	CF ₃	Н	Н	O OCH ₃	
42	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	N(CH ₃) ₂	
43	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	NHCH ₃	
44	S	СН3	CF ₃	Н	Н	NHC ₆ H ₅	
45	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	H ₃ C _N ,C ₆ H ₅	
46	S	Н	CF ₃	Н	Н	Br	
47	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	Br	
48	S	Н	CF ₃	Н	Н	Br	

Bsp Nr.	Q	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Schmelz- punkt (°C)
49	S	СН3	CF ₃	Н	Н	Br	
50	S	Н	CF ₃	Н	CH ₃	Br	
51	S	СН3	CF ₃	Н	СН3	Br	
52.	S	NH ₂	CF ₃	Н	CH ₃	Br	
53	S	Н	CF ₃	Н	Н	CI	
54	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	CI	
55	S	Н	CF ₃	Н	Н	CI	
56	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	CI	
57	S	Н	CF ₃	Н	Н	CH ₃	
58	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	CH ₃	
59	S	Н	CF ₃	Н	Н	CH ₃	

Bsp Nr.	Q	R1	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Schmelz- punkt (°C)
60	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	CH ₃	
61	S	Н	CF ₃	Н	Н	CI	
62	S	СН3	CF ₃	Н	Н	CI	
63	S	Н	CF ₃	Н	Н	CH ₃	
64	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	CH ₃	
65	S	Н	CF ₃	Н	Н	CH ₃	
66	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	CH ₃	
67	S	Н	CF ₃	Н	Н		
68	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н		
69	S	Н	CF ₃	Н	Н	N	

Bsp Nr.	Q	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Schmelz- punkt (°C)
70	S	СН3	CF ₃	Н	Н		
71	S	Н	CF ₃	Н	Н		
72	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н		
73	S	CH ₃	CF ₃	Н	Н	SCH ₃	

WO 99/52906

Ausgangsstoffe der Formel (III):

Beispiel (III-1)

5

10

10,0 g (40,6 mMol) 2-Amino-4-(2,6-dichlor-pyridin-4-yl)-thiazol und 3,55 g Pyridin werden in 200 ml Methylenchlorid vorgelegt und bei 0°C bis 5°C unter Rühren mit 4,88 g Chlorameisensäure-ethylester tropfenweise versetzt. Die Mischung wird bei der angegebenen Temperatur vier Stunden gerührt und anschließend im Wasserstrahlvakuum eingeengt. Der Rückstand wird mit 2N-Salzsäure und Diethylether verrührt und das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

15

Man erhält 10,0 g (77% der Theorie)) N-[4-(2,6-Dichlor-pyridin-4-yl)-thiazol-2-yl]-O-ethyl-urethan vom Schmelzpunkt 161°C.

Anwendungsbeispiele:

Beispiel A

5 Pre-emergence-Test

Lösungsmittel:

5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator:

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät. Nach ca. 24 Stunden wird der Boden mit der Wirkstoffzubereitung begossen. Dabei hält man die Wassermenge pro Flächeneinheit zweckmäßigerweise konstant. Die Wirkstoffkonzentration in der Zubereitung spielt keine Rolle, entscheidend ist nur die Aufwandmenge des Wirkstoffs pro Flächeneinheit.

20

Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

25

30

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 %

totale Vernichtung

In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 2, 5, 8, 10 und 11 bei teilweise guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Mais und Raps, starke Wirkung gegen Unkräuter.

Beispiel B

Post-emergence-Test

5 Lösungsmittel:

5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator:

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden.

Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

20

10

15

Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 2, 5, 8, 10 und 11 bei teilweise guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Weizen, starke Wirkung gegen Unkräuter.

Beispiel C

Nephotettix-Test

5 Lösungsmittel:

7 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator:

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Reiskeimlinge (Oryza sativa) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Larven der Grünen Reiszikade (Nephotettix cincticeps) besetzt, solange die Keimlinge noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Zikaden abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Zikaden abgetötet wurden.

20

15

10

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden Verbindungen der Herstellungsbeispiele gute Wirksamkeit: 1 und 6.

Patentansprüche

1. Substituierte Oxazolyl- und Thiazolyl-uracile der allgemeinen Formel (I)

$$R^2$$
 N
 N
 N
 N
 R^5
 R^4
(I),

5

in welcher

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

10

R¹ für Wasserstoff, Amino oder für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

15

R² für Formyl, Hydroximinomethyl, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

R³ für Wasserstoff, Cyano, Halogen oder für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

20

R⁴ für Wasserstoff, Halogen oder für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, und

25

R⁵ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl, Naphthyl oder Pyridyl steht, wobei die möglichen Substituenten aus folgender Aufzählung ausgewählt sind:

Nitro, Amino, Hydroxy, Mercapto, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, (jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₁-C₄-Alkylamino-carbonyl, Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino-carbonyl, Phenylamino-carbonyl oder N-(C₁-C₄-Alkyl)-phenylamino-carbonyl substituiertes) Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Alkylcarbonylamino, Alkylsulfonylamino, N,N-Bis-alkylcarbonyl-amino, N,N-Bis-alkylsulfonyl-amino und N-Alkylcarbonyl-N-alkylsulfonyl-amino mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen sowie Cycloalkylcarbonylamino und Cycloalkylsulfonylamino mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen.

15

10

5

- 2. Substituierte Oxazolyl- und Thiazolyl-uracile nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
 - Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

20

R¹ für Wasserstoff, Amino oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, noder i-Propyl steht,

25

R² für Formyl, Hydroximinomethyl, Cyano, Carboxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,

R³ für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,

R⁴ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl steht, und

R⁵ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl, Naphthyl oder Pyridyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorzugsweise aus folgender Aufzählung ausgewählt sind:

Nitro, Amino, Hydroxy, Mercapto, Carboxy, Cvano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, (jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, n-, i-, s- oder t-Butoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Phenylaminocarbonyl oder N-Methyl-phenylaminocarbonyl substituiertes) Methyl, Ethyl, noder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, noder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, soder t-Butylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyroyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyl, Acetylamino, Propionylamino, n- oder i-Butyroylamino, Methylsulfonylamino, Ethylsulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino, n-, i-, s- oder t-Butylsulfonylamino, N,N-Bis-acetyl-amino,

30

5

10

15

20

N,N-Bis-propionyl-amino, N,N-Bis-methylsulfonyl-amino, N,N-Bis-ethylsulfonyl-amino, N-Acetyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Acetyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-Propionyl-N-methylsulfonyl-amino, N-propionyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-n-Butyroyl-N-methylsulfonyl-amino, N-n-Butyroyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-i-Butyroyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-Pivaloyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Pivaloyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Pivaloyl-N-ethylsulfonyl-amino, Cyclopropylsulfonyl-amino, Cyclopropylsulfonylamino.

- 10 3. Substituierte Thiazolyl-uracile nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
 - Q für Schwefel steht,
 - R¹ für Wasserstoff, Amino, Methyl oder Ethyl steht,
 - R² für Trifluormethyl steht,
 - R³ für Wasserstoff, Chlor oder Methyl steht,
- 20 R⁴ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder Methyl steht, und
 - R⁵ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl oder Pyridyl steht, wobei die möglichen Substituenten insbesondere aus folgender Aufzählung ausgewählt sind:

Nitro, Amino, Hydroxy, Mercapto, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, (jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbony substituiertes) Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl,

30

25

5

Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Acetylamino, Propionylamino, n- oder i-Butyroylamino, Methylsulfonylamino, Ethylsulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino, n-, i-, s- oder t-Butylsulfonylamino, N,N-Bis-acetyl-amino, N,N-Bis-propionyl-amino, N,N-Bismethylsulfonyl-amino, N,N-Bis-ethylsulfonyl-amino, N-Acetyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Acetyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-Propionyl-N-methylsulfonyl-amino, N-n-Butyroyl-N-methylsulfonyl-amino, N-n-Butyroyl-N-methylsulfonyl-amino, N-i-Butyroyl-N-methylsulfonyl-amino, N-i-Butyroyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-Pivaloyl-N-methylsulfonyl-amino, N-Pivaloyl-N-ethylsulfonyl-amino, N-Pivaloyl-N-ethylsulfonyl-amino, Cyclopropylsulfonylamino.

15

10

5

- 4. Verfahren zum Herstellen von substituierten Oxazolyl- und Thiazolyluracilen nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß man
 - (a) Aminoalkensäureester der allgemeinen Formel (II)

20

$$R^{2} \xrightarrow{NH_{2}} O$$

$$R^{3} \xrightarrow{A^{1}} (II)$$

in welcher

25 R² und R³ die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

Al für Alkyl, Aryl oder Arylalkyl steht,

mit substituierten Oxazolyl- oder Thiazolyl-urethanen (Oxazolyl- oder Thiazolyl-carbamaten) der allgemeinen Formel (III)

$$A_{0}^{2} \xrightarrow{H}_{N} N_{R^{5}}$$
 (III)

5

in welcher

 $Q,\,R^4$ und $R^5\,$ die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

10 A² für Alkyl, Aryl oder Arylalkyl steht,

- oder mit entsprechenden Oxazolyl- oder Thiazolyl-isocyanaten -

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder daß man

(b) substituierte Oxazolyl- oder Thiazolyl-uracile der allgemeinen Formel (Ia),

20

15

in welcher

Q, R², R³, R⁴ und R⁵ die in einem der Ansprüche 1 bis 3 angegebenen Bedeutungen haben,

mit 1-Aminooxy-2,4-dinitro-benzol oder mit Alkylierungsmitteln der allgemeinen Formel (IV)

$$X^{1}-A^{3}$$
 (IV)

in welcher

10

5

A³ für gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht und

X¹ für Halogen oder die Gruppierung -O-SO₂-O-A³ steht,

gegebenenfalls in Gegenwart von Reaktionshilfsmitteln und gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln umsetzt,

und gegebenenfalls im Anschluß daran im Rahmen der Substituentendefinition auf übliche Weise elektrophile oder nucleophile Substitutionsreaktionen, Additions- oder Spaltungsreaktionen, Oxidations- oder Reduktionsreaktionen im Rahmen der Substituentendefinition durchführt.

5. Substituierte Oxazolyl- oder Thiazolyl-uracile der allgemeinen Formel (Ia),

$$R^2$$
 N
 N
 N
 R^5
(Ia)

25

20

in welcher

Q, R², R³, R⁴ und R⁵ die in einen der Ansprüche 1 bis 3 angegebenen Bedeutungen haben.

6. Verwendung von mindestens einem substituierten Oxazolyl- oder Thiazolyluracil nach einem der Ansprüche 1 bis 3 zur Bekämpfung von unerwünschten
Pflanzen.

5

- 7. Verwendung von mindestens einem substituierten Oxazolyl- oder Thiazolyluracil nach einem der Ansprüche 1 bis 3 zur Bekämpfung von tierischen
 Schädlingen, vorzugsweise Arthropoden und/oder Nematoden.
 - 8. Pflanzenbehandlungsmittel, gekennzeichnet durch den Gehalt an mindestens einem Oxazolyl- oder Thiazolyl-uracil nach einem der Ansprüche 1 bis 3 und üblichen Streckmitteln.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internat 4 Application No PCT/EP 99/02087

A. CLASSIF IPC 6	FICATION OF SUBJECT MATTER C07D417/02 A01N43/54 A01N43	3/78	
According to	o International Patent Classification (IPC) or to both national class	sification and IPC	
	SEARCHED		
Minimum do IPC 6	cumentation searched (classification system followed by classifi ${\tt C07D}$	ication symbols)	
Documentat	tion searched other than minimum documentation to the extent th	nat such documents are included in the fields se	arched
Electronic d	ata base consulted during the international search (name of dat	a base and, where practical, search terms used)
C. DOCUM	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category ^c	Citation of document, with indication. where appropriate, of th	e relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 22 07 549 A (BAYER AG) 23 August 1973 (1973-08-23) the whole document		1-8
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 016, no. 114 (C-0921), 23 March 1992 (1992-03-23) & JP 03 287585 A (NISSAN CHEM 18 December 1991 (1991-12-18) cited in the application abstract		1-8
X Furt	ther documents are listed in the continuation of box C.	-/ γ Patent family members are listed	in annex.
² Special ca	ategories of cited documents :		
"A" docum consi "E" earlier filing "L" docum which citatic "O" docum other	dent defining the general state of the art which is not dered to be of particular relevance document but published on or after the international	"T" later document published after the inte or priority date and not in conflict with cited to understand the principle or th invention "X" document of particular relevance; the cannot be considered novel or cannot involve an inventive step when the document of particular relevance; the cannot be considered to involve an indocument is combined with one or ments, such combination being obvious the art.	the application but early underlying the claimed invention to considered to coument is taken alone claimed invention ventive step when the pre other such docuus to a person skilled
Date of the	actual completion of the international search	Date of mailing of the international se	arch report
3	31 August 1999	07/09/1999	
Name and	mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,	Authorized officer Stellmach, J	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Interna. al Application No PCT/EP 99/02087

ategory	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
ategory	Citation of document, with indication, where appropriate, or the relevant passages	Tielevani to Gain No.
,	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 017, no. 644 (C-1134), 30 November 1993 (1993-11-30) & JP 05 202031 A (NISSAN CHEM IND LTD), 10 August 1993 (1993-08-10) cited in the application abstract	1-8
,	WO 97 08170 A (FMC CORP) 6 March 1997 (1997-03-06) the whole document	1-8
Y	WO 98 06706 A (DREWES MARK WILHELM ;ANDREE ROLAND (DE); BAYER AG (DE); DOLLINGER) 19 February 1998 (1998-02-19) the whole document	1-8
Ρ,Χ	WO 98 27083 A (DREWES MARK WILHELM ;ANDREE ROLAND (DE); BAYER AG (DE); DOLLINGER) 25 June 1998 (1998-06-25) the whole document	1-8
Ρ,Χ	US 5 753 595 A (MARAVETZ LESTER L ET AL) 19 May 1998 (1998-05-19) the whole document	1-8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Internat. Application No PCT/EP 99/02087

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 2207549	A	23-08-1973	AT 325887 B AT 138973 A AT 599074 A AT 329076 B AU 466590 B AU 5233873 A BE 795549 A CA 1027122 A CH 585512 A CS 179408 B CY 943 A DD 103791 A DK 132497 B FR 2172345 A GB 1368225 A IE 37572 B JP 48092383 A JP 48092383 A JP 48092533 A NL 7302152 A PH 12198 A RO 62816 A SE 398879 B TR 17446 A US 3920653 A ZA 7301117 A	10-11-1975 15-01-1975 15-07-1975 26-04-1976 30-10-1975 22-08-1974 16-08-1973 28-02-1978 15-03-1977 31-10-1977 23-06-1978 12-02-1974 15-12-1975 28-09-1973 25-09-1974 31-08-1977 30-11-1973 30-11-1973 21-08-1973 21-08-1978 23-07-1978 23-07-1978 23-07-1975 18-11-1973
JP 03287585	Α	18-12-1991	NONE	
JP 05202031	Α	10-08-1993	NONE	
WO 9708170	A	06-03-1997	AU 6961896 A	19-03-1997
WO 9806706	Α	19-02-1998	DE 19632005 A AU 3771497 A EP 0923562 A	12-02-1998 06-03-1998 23-06-1999
WO 9827083	Α	25-06-1998	DE 19652431 A AU 5754598 A	18-06-1998 15-07-1998
US 5753595	 А	19-05-1998	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internation es Aktenzeichen

		PCI/EP	99/0208/
A. KLASSIF IPK 6	Fizierung des anmeldungsgegenstandes C07D417/02 A01N43/54 A01N43/78	3	
Nach der Int	Constitution (IRV) aday pack day nationalan Viacon	- 101 - 11 - 11 - 11 - 11 - 11 - 11 - 1	
	ernationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klass RCHIERTE GEBIETE	sifikation und der IPN	
	ter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbol	e)	
IPK 6	C07D	-,	
Recherchier	te aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, sov	veit diese unter die recherchierten Ge	biete fallen
Während de	er internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Na	ame der Datenbank und evti. verwend	dete Suchbegriffe)
C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie -	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe	der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
	3		
X	DE 22 07 549 A (BAYER AG) 23. August 1973 (1973-08-23) das ganze Dokument		1-8
Υ	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 016, no. 114 (C-0921), 23. März 1992 (1992-03-23) & JP 03 287585 A (NISSAN CHEM IND 18. Dezember 1991 (1991-12-18) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung	LTD), /	1-8
	itere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu nehmen	X Siehe Anhang Patentfamilie	
"A" Veröffe aber r "E" älteres Anme "L" Veröffe soll or ausge "O" Veröffe eine B "P" Veröffe dem l	entlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist sookument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen eldedatum veröffentlicht worden ist entlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft ernen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer ren im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden der die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie eführt) entlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht entlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach	öder dem Prioritätsdatum veröffe Anmeldung nicht kollidiert, sonde Erfindung zugrundeliegenden Pri Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer kann allein aufgrund dieser Verö erfinderischer Tätigkeit beruhenc "Y" Veröffentlichung von besonderer kann nicht als auf erfinderischer werden, wenn die Veröffentlichur	ern nur zum Verständnis des der inzips oder der ihr zugrundeliegenden Bedeutung; die beanspruchte Erfindung fifentlichung nicht als neu oder auf i betrachtet werden Bedeutung; die beanspruchte Erfindung Tätigkeit beruhend betrachtet ng mit einer oder mehreren anderen orie in Verbindung gebracht wird und mann naheliegend ist seelben Patentfamilie ist
3	31. August 1999	07/09/1999	
Name und	Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Eav. (431-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Stellmach, J	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internat. res Aktenzeichen
PCT/EP 99/02087

C.(Fortsetz	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 017, no. 644 (C-1134), 30. November 1993 (1993-11-30) & JP 05 202031 A (NISSAN CHEM IND LTD), 10. August 1993 (1993-08-10) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung	1-8
Y	WO 97 08170 A (FMC CORP) 6. März 1997 (1997-03-06) das ganze Dokument	1-8
Y	WO 98 06706 A (DREWES MARK WILHELM ;ANDREE ROLAND (DE); BAYER AG (DE); DOLLINGER) 19. Februar 1998 (1998-02-19) das ganze Dokument	1-8
P, X	WO 98 27083 A (DREWES MARK WILHELM ;ANDREE ROLAND (DE); BAYER AG (DE); DOLLINGER) 25. Juni 1998 (1998-06-25) das ganze Dokument	1-8
P,X	US 5 753 595 A (MARAVETZ LESTER L ET AL) 19. Mai 1998 (1998-05-19) das ganze Dokument	1-8

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internat. es Aktenzeichen
PCT/EP 99/02087

lm Recherchenbericht ngeführtes Patentdokum		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 2207549	A	23-08-1973	AT 325887 B AT 138973 A AT 599074 A AT 599076 B AU 466590 B AU 5233873 A BE 795549 A CA 1027122 A CH 585512 A CS 179408 B CY 943 A DD 103791 A DK 132497 B FR 2172345 A GB 1368225 A IE 37572 B JP 48092383 A JP 48092533 A NL 7302152 A PH 12198 A RO 62816 A SE 398879 B TR 17446 A US 3920653 A ZA 7301117 A	10-11-1975 15-01-1975 15-07-1975 26-04-1976 30-10-1975 22-08-1974 16-08-1973 28-02-1978 15-03-1977 31-10-1977 23-06-1978 12-02-1974 15-12-1975 28-09-1974 31-08-1977 30-11-1973 21-08-1973 21-08-1978 15-05-1978 23-01-1978 23-07-1975 18-11-1973
JP 03287585	Α	18-12-1991	KEINE	
JP 05202031	Α	10-08-1993	KEINE	
WO 9708170	Α	06-03-1997	AU 6961896 A	19-03-1997
WO 9806706	Α	19-02-1998	DE 19632005 A AU 3771497 A EP 0923562 A	12-02-1998 06-03-1998 23-06-1999
WO 9827083	Α	25-06-1998	DE 19652431 A AU 5754598 A	18-06-1998 15-07-1998
US 5753595	А	 19-05-1998	KEINE	